

This Page Is Inserted by IFW Operations  
and is not a part of the Official Record

## **BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning documents *will not* correct images,  
please do not report the images to the  
Image Problem Mailbox.**

⑩ 日本国特許庁(JP)

⑪ 特許出願公告

⑫ 特許公報(B2)

昭61-17834

⑬ Int. Cl.<sup>4</sup>

識別記号

庁内整理番号

⑭ 公告 昭和61年(1986)5月9日

C 07 D 483/04

1 0 6

7252-4C

発明の数 1 (全4頁)

⑮ 発明の名称 ビス(p-エチルベンジリデン)ソルビトールの分離方法

⑯ 特 願 昭55-92262

⑰ 公 開 昭57-18682

⑱ 出 願 昭55(1980)7月8日

⑲ 昭57(1982)1月30日

⑳ 発 明 者 笹 川 勝 好 横浜市戸塚区矢部町1541

㉑ 発 明 者 河 合 洋 一 横浜市戸塚区矢部町1541

㉒ 発 明 者 今 井 雅 夫 横浜市瀬谷区瀬谷町4598の6

㉓ 出 願 人 三井東圧化学株式会社 東京都千代田区霞が関3丁目2番5号

㉔ 審 査 官 佐 伯 と も 子

㉕ 参 考 文 献 特開 昭48-99244 (JP, A) 特公 昭48-43748 (JP, B1)

特公 昭49-14758 (JP, B1)

薬学雑誌79 (1959) p.600-602

1

2

## ① 特許請求の範囲

1 ソルビトールとソルビトール1モルに対して1.6~2.2モルのp-エチルベンズアルデヒドとを、水と共沸する有機溶媒を用いて酸触媒の存在下に加熱し、ビス(p-エチルベンジリデン)ソルビトールを製造する方法において、脱水縮合させて得られる反応液にpH7.1~8.0の微アルカリ性の水溶液を加えて加熱し、有機溶媒を水と共沸混合物として留去し、生成したビス(p-エチルベンジリデン)ソルビトールを固体粉末として分離することを特徴とするビス(p-エチルベンジリデン)ソルビトールの分離方法。

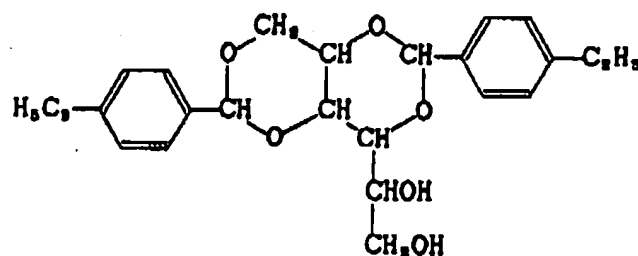
## 発明の詳細な説明

本発明は、ビス(p-エチルベンジリデン)ソルビトールの分離方法に関する。

さらに詳しくは、有機溶媒を用いて合成したビス(p-エチルベンジリデン)ソルビトールを極めて容易に反応液から分離することを可能にしたビス(p-エチルベンジリデン)ソルビトールの分離方法に関する。

ポリオレフィン樹脂の成形時に少量添加して透明性を向上させる効果を有する、いわゆる透明化剤には種々のものがあるが、最近、本発明者らは、下記の化学構造を有するビス(p-エチルベンジリデン)ソルビトールが透明化剤として卓越した効果を有することを発見し、ビス(p-エチルベンジリデン)ソルビトールの分離方法について

は、下記の化学構造を有するビス(p-エチルベンジリデン)ソルビトールが透明化剤として卓越した効果を有することを発見し、ビス(p-エチルベンジリデン)ソルビトールの分離方法について



鋭意研究を行ない本発明に到った。

従来、D-ソルビトールとベンズアルデヒドとを反応させ、特にベンズアルデヒドとの反応について、良

く研究がなされており、酸触媒の存在下で溶媒を用いずに脱水縮合させる方法(薬学雑誌79巻、598頁、1958年)およびシクロヘキサンなどの有

(2)

特公 昭 61-17834

3

機溶媒を用いて脱水縮合させる方法（特公昭48-43748）などが知られている。しかし、D-ソルビトールとP-エチルベンズアルデヒドの反応については、従来、研究されていなかった。このため、本発明者らはD-ソルビトールとP-エチルベンズアルデヒドとの脱水縮合によりビス（P-エチルベンジリデン）ソルビトールを得ることを目的に、酸触媒の存在下で溶媒を用いない方法と溶媒を用いた方法について反応を試みた。その結果、溶媒を用いない場合は、反応生成物が固化し、反応器から生成物を取り出し難く工業的に有利な方法ではなく、またシクロヘキサンのような有機溶媒を用いた場合は、反応時および反応後に加熱を続ければ固化することなく、ゾル状態を保ち反応液を反応器から抜き出すことは可能であるがビス（P-エチルベンジリデン）ソルビトールを分離するのが困難であることが判った。すなわち後者の場合、取り出したゾル状態の反応液は温度が下るにつれ、ゲル状態になり易く、このまま通過すれば通過に長時間を要するばかりでなく、通過後のケーキには多量の有機溶媒を含有する。このため、熱通過を行うとにより、通過の速度を早めることが可能であるが、通過の際に有機溶媒が蒸発する欠点があるばかりでなく、ケーキに含まれる酸触媒を抽出する工程をさらに行わねばならないなど複雑な製造工程を必要とすることが判った。

このような状況に鑑み、本発明者らは、ビス（P-エチルベンジリデン）ソルビトールの分離法につき、鋭意研究を行つた。

D-ソルビトールとP-エチルベンズアルデヒドを水と共沸する有機溶媒を用いて酸触媒の存在下に脱水縮合させ、得られるビス（P-エチルベンジリデン）ソルビトールを含む反応液に水を加えて加熱すれば、従来の通念からは加水分解の反応が起こるものと予想される。

しかしながら、驚くべきことに反応液に加える水をpH7.1~8.0の微アルカリ性にするることにより、ビス（P-エチルベンジリデン）ソルビトールの加水分解反応が起らないばかりでなく、有機溶媒を加えた水との共沸混合物として留去して行くと、有機溶媒がほぼ完全に反応系外に留出した時点からビス（P-エチルベンジリデン）ソルビトールが微細な粉末状態となつて水中に遊離して

浮遊してくるという現象が起ることが判った。この粉末状態となつたビス（P-エチルベンジリデン）ソルビトールの分離は通常の通過により極めて容易に可能である。すなわち、本発明は、有機溶媒を用いて合成したビス（P-エチルベンジリデン）ソルビトールを含む反応液にpH7.1~8.0の微アルカリ性の水を加えたのち、有機溶媒を留去することにより、ビス（P-エチルベンジリデン）ソルビトールの加水分解を惹起させずにゾル状態である反応液からビス（P-エチルベンジリデン）ソルビトールを粉末状で分離取得する方法である。

本発明の方法で、ビス（P-エチルベンジリデン）ソルビトールを分離すれば、反応に使用した有機溶媒はほぼ完全に反応系外に留去しうするため、有機溶媒を含むことのない粉末状のビス（P-エチルベンジリデン）ソルビトールを得ることが可能となり、ビス（P-エチルベンジリデン）ソルビトールをさらに、有機溶剤を用いて精製する必要がある場合、反応に使用した有機溶媒と精製に使用する有機溶剤との混合が避けられるため、有機溶媒と有機溶剤の回収利用が簡略化されるという利点をも有し、また、反応に使用した酸触媒も同時に除去できるなど、予測しえない工業的に極めて有利なビス（P-エチルベンジリデン）ソルビトールの分離法である。

本発明の方法において用いる原料のソルビトールとP-エチルベンズアルデヒドの割合は、ソルビトール1モルに対してP-エチルベンズアルデヒドが1.6~2.2モルである。P-エチルベンズアルデヒドが1.6モルより少ない場合は、固体粉末として得られる精製する前のビス（P-エチルベンジリデン）ソルビトールの中に、ソルビトール1分子にP-エチルベンズアルデヒドが、1分子脱水縮合して反応した下記の化学構造を有するP-エチルベンジリデンソルビトールが高割合で含有されてくるため、純度の高いビス（P-エチルベンジリデン）ソルビトールが得られ難くなり、収率も低下する。